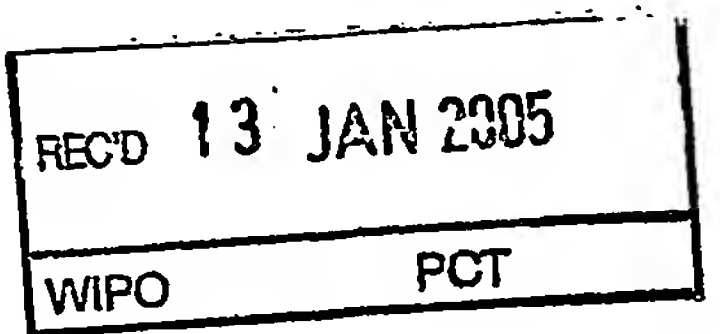


15.11.2004

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年11月14日
Date of Application:

出願番号 特願2003-385245
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP 2003-385245]

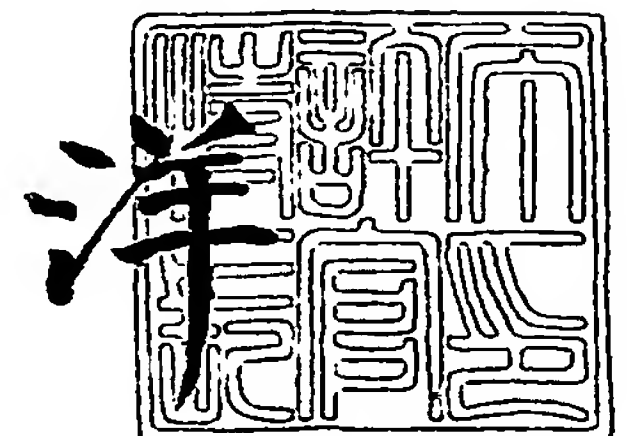
出願人 バブコック日立株式会社
Applicant(s):

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年12月22日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願
【整理番号】 B280312778
【提出日】 平成15年11月14日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 B01D 53/34
【発明者】
 【住所又は居所】 広島県呉市宝町 3 番 3 6 号 バブコック日立株式会社 呉研究所
 内
 【氏名】 加藤 泰良
【特許出願人】
 【識別番号】 000005441
 【氏名又は名称】 バブコック日立株式会社
 【代表者】 小川 隼人
【代理人】
 【識別番号】 100076587
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 川北 武長
 【電話番号】 03-3639-5592
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 006688
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9006602

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

アンモニア (NH_3) を含有するガスを、 NH_3 を酸化して一酸化窒素 (NO) を生成する機能を有する流路と、該機能を有さない流路とを並列に有する前処理触媒層に接触させた後、脱硝機能と、 NH_3 を酸化して NO を生成する機能とを併せもつ触媒層に接触させて浄化することを特徴とする NH_3 含有ガスの浄化方法。

【請求項 2】

前記前処理触媒層が、流路断面の一部が、白金 (Pt)、パラジウム (Pd) またはロジウム (Rh) が担持されたゼオライト、シリカ、チタニア、ジルコニアおよびアルミナから選ばれた NH_3 酸化活性成分を含む触媒層からなり、該流路断面の他の部分が前記 NH_3 酸化活性成分を含まない触媒層からなることを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記脱硝機能と、 NH_3 を酸化して NO を生成する機能とを併せもつ触媒が、酸化チタン (TiO_2) と、バナジウム (V)、タングステン (W) およびモリブデン (Mo) のうち少なくとも 1 種の酸化物と、白金 (Pt) を担持したゼオライト、チタニア、アルミナまたはジルコニアとを含むことを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の方法。

【請求項 4】

前記前処理触媒層で処理したガス中の NH_3 濃度が NO_x 濃度よりも大きくなるように、前処理触媒における NH_3 を酸化して NO を生成する機能を有する流路と、該機能を有さない流路への NH_3 含有ガスの供給量を制御することを特徴とする請求項 1～3 の何れかに記載の方法。

【請求項 5】

前記 NH_3 を含有するガスが、排水中の NH_3 を気相中に移行させた後のガスである請求項 1～4 の何れかに記載の方法。

【請求項 6】

アンモニア (NH_3) を含有するガスの流路断面にガス流れ方向に沿って、 NH_3 の一部を NO に酸化する前処理触媒層と、 NH_3 分解触媒層とを設けた NH_3 含有ガスの浄化装置であって、前記前処理触媒層は、流路断面の一部が、白金 (Pt)、パラジウム (Pd) またはロジウム (Rh) が担持されたゼオライト、シリカ、チタニア、ジルコニアおよびアルミナからなる群から選ばれた NH_3 酸化活性成分を含む触媒層からなり、該流路断面の他の部分が前記 NH_3 酸化活性成分を含まない触媒層からなることを特徴とする NH_3 含有ガスの浄化装置。

【請求項 7】

前記ガス流路断面の一部が、白金 (Pt)、パラジウム (Pd) またはロジウム (Rh) が担持されたゼオライト、シリカ、チタニア、ジルコニアおよびアルミナから選ばれた NH_3 酸化活性成分を含む触媒層からなり、該流路断面の他の部分が前記 NH_3 酸化活性成分を含まない触媒層からなる、請求項 6 の装置に用いる前処理触媒。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 アンモニア含有ガスの浄化方法および装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、アンモニア (NH_3) 含有ガスの浄化方法および装置に係り、特に、排ガス中の NH_3 または廃液中から気相に追い出された NH_3 を無害化する方法および装置であって、高濃度の NH_3 を高効率で窒素に酸化、分解することができる NH_3 含有ガスの浄化方法および装置に関する。

【背景技術】

【0002】

NH_3 を含有する排ガスおよび廃液は、半導体工場など各種工場から多量に排出され、窒素酸化物および硫黄酸化物に並ぶ公害物質の一つとして臭気公害や水質の悪化など多様な害をもたらしている。特に、近年では、工業排水に含まれる NH_3 による赤潮の発生など海水の富栄養化が社会問題になり、排水中の NH_3 濃度を厳しく制限する法が整備され始めている。このため、 NH_3 を無害化する技術について種々の研究、開発がなされ、 NH_3 含有排出物の処理技術として、次のようなものが主流になりつつある。

【0003】

すなわち、例えば、気相中の NH_3 を分解する技術としては、 NH_3 を触媒で接触酸化する方法が、一方、工業排水中に含まれる NH_3 を分解する技術としては、排水中の NH_3 を曝気塔や蒸散塔で気相に移行させたのち、上述した触媒を用いて接触酸化して無害化する方法がある。これらの技術は、脱硝活性成分による脱硝機能と、貴金属成分による、 NH_3 を酸化して窒素酸化物 (NO_x) を生成する機能とを併せ持つ多元機能触媒を使用するものであり、例えば数%の NH_3 を効率よく無害な窒素 (N_2) に変換できる技術として注目されている。

【特許文献1】 特開平05-146634号公報

【特許文献2】 特開2000-317272号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

しかしながら上記従来技術には、排ガス中の NH_3 濃度またはガス中に移行した NH_3 濃度が高い場合に、 NH_3 の酸化反応熱によって触媒自体が熱劣化したり、触媒層内の温度上昇に起因して NH_3 から一酸化窒素 (NO) を生成する反応が進行し過ぎるという問題があった。図5は、多元機能触媒（以下、 NH_3 分解触媒という）2を用いた反応塔例を示したものである。この反応塔9で被処理ガス14に含まれる高濃度の NH_3 を無害化する際、 NH_3 の酸化熱が触媒入口部に集中して触媒の寿命を短くしたり、反応熱による温度上昇に起因して脱硝機能と NH_3 から NO を発生させる機能とのバランスが崩れ、 NO_x などの副生物が多量に発生するという問題があった。

【0005】

そこで、このような問題を避けるために、図6に示したように、 NH_3 分解触媒層2の前流側に公知の耐熱性の高い貴金属系酸化触媒層12を配置して NH_3 の一部を予め NO_x に変換した後、前記 NH_3 分解触媒層2に導入する方法が考えられたが、この方法においても、排ガス中の NH_3 濃度が高い場合には、反応熱により前記貴金属系酸化触媒層12による NH_3 酸化反応が熱暴走して大量の NO_x が副生されるという問題が生じる。またこの方法は、ガス流量や NH_3 濃度が変動すると、予め分解する NH_3 の割合が大きく変化するので、後流部で NH_3 を完全に分解できなくなるおそれもあった。

【0006】

本発明の課題は、上記従来技術の問題点をなくし、高濃度の NH_3 を含む排ガス中の NH_3 を、触媒の劣化や副生物の増大を招くことなく、効率よく分解、処理して無害化することができる、 NH_3 含有ガスの浄化方法および浄化装置を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

上記課題は、高濃度の NH_3 を含むガスを、あらかじめ NH_3 を酸化して NO_x を生成する機能を有する流路と、このような機能を有さない流路を並列に配置した前処理触媒層を通過させた後、脱硝機能と、 NH_3 を酸化して NO_x を生成する機能とを併せもつ NH_3 分解触媒層に接触させることにより、解決することができる。

【0008】

すなわち、本願で特許請求する発明は、以下のとおりである。

(1) アンモニア(NH_3)を含有するガスを、 NH_3 を酸化して一酸化窒素(NO)を生成する機能を有する流路と、該機能を有さない流路とを並列に有する前処理触媒層に接触させた後、脱硝機能と、 NH_3 を酸化して NO を生成する機能とを併せもつ触媒層に接触させて浄化することを特徴とする NH_3 含有ガスの浄化方法。

(2) 前記前処理触媒層が、流路断面の一部が、白金(Pt)、パラジウム(Pd)またはロジウム(Rh)が担持されたゼオライト、シリカ、チタニア、ジルコニアおよびアルミナから選ばれた NH_3 酸化活性成分を含む触媒層からなり、該流路断面の他の部分が前記 NH_3 酸化活性成分を含まない触媒層からなることを特徴とする上記(1)に記載の方法。

【0009】

(3) 前記脱硝機能と、 NH_3 を酸化して NO を生成する機能とを併せもつ触媒が、酸化チタン(TiO_2)と、バナジウム(V)、タングステン(W)およびモリブデン(Mo)のうち少なくとも1種の酸化物と、白金(Pt)を担持したゼオライト、チタニア、アルミナまたはジルコニアを含むことを特徴とする上記(1)または(2)に記載の方法。

(4) 前記前処理触媒層で処理したガス中の NH_3 濃度が NO_x 濃度よりも大きくなるように、前処理触媒における NH_3 を酸化して NO を生成する機能を有する流路と、該機能を有さない流路への NH_3 含有ガスの供給量を制御することを特徴とする上記(1)～(3)の何れかに記載の方法。

【0010】

(5) 前記 NH_3 を含有するガスが、排水中の NH_3 を気相中に移行させた後のガスである上記(1)～(4)の何れかに記載の方法。

(6) アンモニア(NH_3)を含有するガスの流路断面にガス流れ方向に沿って、 NH_3 の一部を NO に酸化する前処理触媒層と、 NH_3 分解触媒層とを設けた NH_3 含有ガスの浄化装置であって、前記前処理触媒層は、流路断面の一部が、白金(Pt)、パラジウム(Pd)またはロジウム(Rh)が担持されたゼオライト、シリカ、チタニア、ジルコニアおよびアルミナからなる群から選ばれた NH_3 酸化活性成分を含む触媒層からなり、該流路断面の他の部分が前記 NH_3 酸化活性成分を含まない触媒層からなることを特徴とする NH_3 含有ガスの浄化装置。

【0011】

(7) 前記ガス流路断面の一部が、白金(Pt)、パラジウム(Pd)またはロジウム(Rh)が担持されたゼオライト、シリカ、チタニア、ジルコニアおよびアルミナから選ばれた NH_3 酸化活性成分を含む触媒層からなり、該流路断面の他の部分が前記 NH_3 酸化活性成分を含まない触媒層からなる、上記(6)の装置に用いる前処理触媒。

【発明の効果】

【0012】

本願の請求項1に記載の発明によれば、前流側の前処理触媒層で、後流側の NH_3 分解触媒層に流入するガス中の NH_3 濃度を、該 NH_3 分解触媒層における NH_3 分解反応に適した濃度まで低減することができるので、高濃度の NH_3 を含有するガスであっても、触媒層の熱的劣化を招くことなく、また副生物である NO_x の発生を増加させることなく効率よく処理することができる。

【0013】

本願の請求項2に記載の発明によれば、上記発明の効果に加え、流路の一部が、貴金属を担持した酸化活性成分を含む触媒層からなる前処理触媒によって排ガス中の NH_3 濃度を後流の NH_3 分解触媒層で処理可能な濃度まで低減することができる。

【0014】

本願の請求項3に記載の発明によれば、上記発明の効果に加え、所定濃度まで低減したNH₃含有ガス中の前記NH₃を、所定の金属および貴金属を含むNH₃分解触媒層を用い、脱硝機能とNH₃をNOに酸化する機能とをバランスさせて効率よく分解、処理することができる。

【0015】

本願の請求項4に記載の発明によれば、上記発明の効果に加え、前処理触媒層出口ガス中のNH₃濃度を、効率よくNO_x濃度よりも大きくすることができる。

本願の請求項5に記載の発明によれば、上記発明の効果に加え、高濃度のNH₃を含有する排液であっても、該排液中のNH₃を気相に移行させたのち、効率よく分解して無害化することができる。

【0016】

本願の請求項6に記載の発明によれば、後流のNH₃分解触媒層に流入するガス中のNH₃濃度を、該NH₃分解触媒層における処理に適した濃度まで低減することができるので、希釈用の空気、水蒸気等を使用することなく、またはその使用量を極力低減して、高濃度のNH₃含有ガスを効率よく処理することができる。

本願の請求項7に記載の発明によれば、排ガスに含まれるNH₃の一部を効率よくNOに酸化することができる。

【0017】

ここで、図3に基づいて、本発明の原理を説明する。

図3は、Pt、Pd、Rhなどの貴金属担持触媒によるNH₃酸化率の温度依存性例を、NH₃濃度が高い場合（太線）と低い場合（細線）について示したものである。

貴金属担持触媒の存在下におけるNH₃酸化反応は下記1式で示され、大きな発熱を伴う。

【0018】

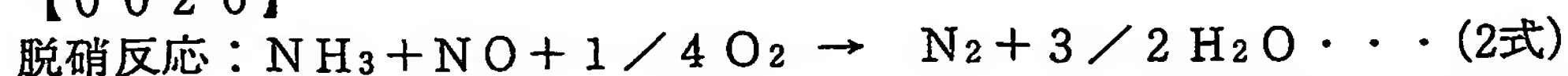


従って、NH₃濃度が高いと酸化反応により処理ガス温度が上昇し、それに伴って反応速度が更に速くなり、NH₃酸化率の変化は図3中太線で示したように、急激に立ち上がる特性を示す。そしてこのような急激な立ち上がり特性を有するために、入口温度、NH₃濃度、またはガス量の僅かな変化によりNH₃酸化率はゼロ%か100%のどちらかに近い値にしかとることができない。従って、上述した図6の従来技術のように、NH₃分解触媒層2の前流側に、貴金属系酸化触媒層12を設置して予めNH₃を部分的に酸化させてNH₃濃度を低減させた後、NH₃分解触媒層2に導入して処理しようとしても、NH₃の大部分が前流の貴金属系酸化触媒層12でNO_xに酸化されてしまうので、NO_xが未処理のまま系外に放出されるという問題が生じる。

【0019】

これに対して、前処理触媒層を用いる本発明は、前処理触媒層が、貴金属触媒が担持された流路と担持されない流路が、例えば図2（A）、（B）または（C）に示したように分散した構造を有しているので、貴金属触媒が担持された流路で100%近いNH₃の酸化が起こっても、貴金属触媒が担持されていない流路を通過するNH₃は分解せずに残存する。従って、貴金属成分を担持された流路と担持されない流路とを通過するガス量の割合（各断面に占める触媒流路の割合）を選択することにより、高濃度のNH₃を任意の割合で部分酸化することができる。このように、被処理ガスを予め前処理触媒に流通させて、後流のNH₃分解触媒層に流入するガス中のNH₃濃度を低減することにより、NH₃分解触媒を異常な高温にすることなく、ガス中のNH₃を効率よく分解することができる。このとき、NH₃濃度>NO_x濃度になるように調整することが好ましい。これによって脱硝反応と触媒内部NH₃酸化反応の協奏作用（下記2式、3式）でNH₃、NO_x共に数ppm以下まで低減することができる。

【0020】



触媒内部 NH_3 酸化反応： $\text{NH}_3 + 5/4 \text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + 3/2 \text{H}_2\text{O} \cdots (3\text{式})$

【発明を実施するための最良の形態】

【0021】

図1は、本発明の一実施例である NH_3 含有ガス浄化装置を示す説明図である。図1において、触媒塔9のガス流れ方向に沿って NH_3 を酸化して NO を生成する機能を有する流路と、このような機能を有しない流路とを有する前処理触媒層1と、脱硝機能と、 NH_3 を酸化して NO を生成する機能とを併せもつ NH_3 分解触媒層2が設けられている。

【0022】

このような構成において、被処理ガス14としての高濃度 NH_3 含有ガスは、前処理触媒層1に流入し、その一部が、 NH_3 を酸化して NO を生成する機能を有する流路を流通して NH_3 の一部が NO となり、 NH_3 を酸化する機能を有しない流路を流通するガス中の NH_3 は酸化されることなく触媒層を通過する。このようにして NH_3 の一部が NO に酸化され、 NH_3 濃度が、後流の NH_3 分解触媒層2における処理に適した濃度となったガスは、次いで NH_3 分解触媒層2に流入し、ここで脱硝反応と NH_3 酸化反応との協奏作用によって処理され、 NH_3 および NO 濃度が共に数ppm以下まで低減される。

【0023】

本実施例によれば、前処理触媒層1に、貴金属成分を含む流路と含まない流路を設けたことによって、ある程度条件が変動しても被処理ガス中の NH_3 を部分的に分解して NH_3 濃度を、後流の NH_3 分解触媒層2における処理に適した濃度まで低減することができるので、前記前処理触媒層1と NH_3 分解触媒層2とを組合わせて、不要な NO を副生することなく、 NH_3 を効率よく分解、処理することができる。

【0024】

また、本実施例によれば、従来技術では触媒の劣化や NO_x 生成のため処理することが難しかった高濃度の NH_3 含有ガスを NO_x を副生することなく高効率で除去することができるので、従来必要であった NH_3 濃度を処理可能な濃度まで希釈する空気や水蒸気量を大幅に減らすことができ、ランニングコストを低減することができる。さらに、反応熱による触媒の異常加熱による劣化を防止できる効果や、運転条件の変動に影響されにくいという効果もある。

【0025】

本発明において、 NH_3 を酸化して NO_x を生成する機能を有する流路と、該機能を有さない流路とからなる前処理触媒とは、例えばコージエライトなどのセラミックスハニカム、無機繊維不織布や金属薄板などからなるコルゲートハニカムのよう、各流路が入口から出口まで単一流路で構成された形状の触媒（ハニカム触媒）であって、その流路の一部が白金(Pt)、パラジウム(Pd)またはロジウム(Rh)が担持されたゼオライト、シリカ、チタニア、ジルコニア、アルミナなどからなる NH_3 酸化活性成分を含む触媒層からなり、他の流路部分が前記 NH_3 酸化活性成分を含まない触媒層からなる触媒体または触媒充填層である。

【0026】

酸化活性成分を含む流路部分と含まない流路部分の配置構造はどのようなものであっても良く、例えば酸化活性成分を担持した触媒担体と担持しない触媒担体とを集合させるか、図2(A)、(B)または(C)に示したように、触媒成分を担持させた流路を、例えば層状、千鳥状、海鳥状などに配列したものが好適に使用される。貴金属触媒成分を含む流路と含まない流路を形成するに当たり、流路の分画数を大きくすると、 NH_3 酸化反応熱を貴金属触媒を含む流路から含まない流路に逃がすことができるので、触媒入口部分での異常な温度上昇による触媒劣化を防止することができる。

【0027】

本発明において、前処理触媒層における酸化活性成分としての貴金属担持量は特に限定されないが、ゼオライトやシリカなどの担体に対しては0.05wt%～10wt%の範囲が好結果を与える。一方、流路に対する貴金属担持量は多い方がよいが、貴金属担持量の増加は価格の上昇を招くので、例えば0.01g/リットル以上、好ましくは0.1g～2g/リットルである

【0028】

本発明において、脱硝機能と、 NH_3 を酸化して NO_x を生成する機能とを併せもつ NH_3 分解触媒は、例えば脱硝触媒成分としてチタン(Ti)酸化物を主成分とし、活性成分にバナジウム(V)酸化物を添加したものに、貴金属としてPtを担持したゼオライトや多孔質シリカを疎らに存在させた特開昭05-146634号公報や特開2000-317272号公報に開示した触媒を使用することができる。 NH_3 分解触媒の形状は、前処理触媒と同様、例えば各種ハニカム状担体に触媒成分を公知の方法で担持したものが使用されるが、特に限定されるものではなく、板状触媒の積層体等、どのようなものであってもよい。

【0029】

本発明において、前処理触媒層における NH_3 を酸化してNOを生成する機能を有する流路と、該機能を有しない流路への NH_3 含有ガスの供給量の制御は、例えば、前記 NH_3 を酸化してNOを生成する機能を有する流路と、該機能を有しない流路との存在割合を調整することによって行われ、これによって前処理触媒層出口ガス中の NH_3 濃度が NO_x 濃度よりも大きくなるように制御される。この場合、予め前処理触媒層で酸化分解しておきたい NH_3 の割合と、全ガス流路に対する酸化活性を有する流路の占める割合とが等しくなるように選定すると所望の結果が得られ易い。

【0030】

図4は、本発明の他の実施例を示す装置系統図であり、本発明を、半導体工場などから排出される排水処理に応用したものである。図4において、この装置は、 NH_3 含有排水の中和槽10と、該中和槽10にポンプ11を介して連結された予熱器5およびストリッピング塔6と、該ストリッピング塔6の後流に配置された触媒塔9と、該触媒塔9内に、ガス流れ方向に沿って順次配列された前処理触媒層1および NH_3 分解触媒層2とから主として構成されている。7は、キャリアガス、8は、希釈空気である。

【0031】

このような構成において、 NH_3 含有排水は、まず中和槽10に流入し、ここで、例えば水酸化ナトリウムによってpHが7以上に調整された後、ポンプ11および予熱器5を経て所定温度でストリッピング塔6に流入し、ここでアンモニアがストリッピングされて気相に移行する。ストリッピング後のアンモニアを含むガスは、必要に応じて空気で希釈されたのち、後流の触媒塔9に導かれ、ここで前処理触媒層1で NH_3 の一部が NO_x に変換され、 NH_3 分解触媒層2における処理に適した NH_3 濃度になったのち、 NH_3 分解触媒2に流入し、脱硝機能と NH_3 を酸化してNOを生成する機能とのバランスにより、 NH_3 が、効率よく N_2 と H_2O に分解、無害化される。

【0032】

本実施例によれば、高濃度の NH_3 を含有する排水であっても、該排水中の NH_3 を気相中に移行させたのち、効率よく無害化することができる。また、装置のコンパクト化に加え、希釈空気等の使用量を極力低レベルに抑えて省エネルギー化を図ることができる。

次に本発明の具体的実施例を説明する。

【実施例1】

【0033】

水素置換型モルデナイト粉末(東ソー社製HSZ-650、 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=23$)50gに対し、重量割合でPtが0.5%になるように塩化白金酸($\text{HPtCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)の水溶液を規定量加えて蒸発乾固した後、550℃で2時間焼成してPt-モルデナイト触媒を得た。これをシリカゾルと水でスラリー化し、市販のシリカ・アルミナ繊維製コルゲートハニカム担体(150角-20L、ニチアス社製ハニクル3722)にコーティングした後、風乾2時間、120℃乾燥2時間、500℃焼成2時間によりハニカム形状のPt-モルデナイト触媒を得た。本触媒のPt担持量は0.75g/Lである。これを25mm幅で切断し25×150-20Lの NH_3 酸化成分を含む流路部を得た。

【0034】

一方、上記と同様のコルゲートハニカム担体を、触媒成分を担持しないで25×150-20L

の帯状に切断し、 NH_3 酸化成分を含まない流路部を得た。

上記酸化成分を含む流路部と酸化成分を含まない流路部とを交互に6段積層した後、周囲を金属枠で覆い、150角-20Lの前処理用触媒体(図2(A)相当)を得た。

【0035】

これとは別に、 $1.33 \times 10^{-2} \text{ wt} \%$ の塩化白金酸($\text{H}_2[\text{PtCl}_6] \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)水溶液1Lに、微粒シリカ粉末(富田製薬社製、マイコンF)100gを加えて砂浴上で蒸発乾固し、空气中、 500°C で2時間焼成して $0.05\text{wt}\% \text{Pt} \cdot \text{SiO}_2$ を調製して第1成分の触媒粉末を得た。これとは別に、酸化チタン粉末(石原産業社製MCH、 SO_4 含有量: $3 \text{ wt} \%$)46.7kgにパラタングステン酸アンモニウム($(\text{NH}_4)_{10}\text{H}_{10} \cdot \text{W}_{12}\text{O}_{46} \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)7.43kg、メタバナジン酸アンモニウム3.0kgとを加えてニーダを用いて混練し、得られたペーストを造粒後乾燥、 550°C で2時間焼成した。得られた顆粒を粉碎して第2成分である触媒粉末($\text{Ti}/\text{W}/\text{V}=91/5/4$ (原子比))を得た。得られた第2成分2.0kgと第1成分202gとを水306kgに懸濁させて得たスラリーに、アルミナ・シリカ繊維製コルゲートハニカム担体(ニチアス製ハニカル3722、150角-100L)を浸漬して担体にスラリーを含浸した後、エアブローで液切りし、大気中で乾燥後、 500°C で2時間焼成して後流部に設置する NH_3 分解触媒層を得た。なお、触媒の大きさ表す際の単位として省略されているものは、全てmmであり、以下の各実施例においても同様である。

【実施例2】

【0036】

実施例1の前処理用触媒層の調製法を以下のように変更した以外は、上記実施例1と同様の方法で前処理触媒層を得た。

実施例1で用いたシリカアルミナ繊維製コルゲートハニカム(150角-20L)に30% TiO_2 ゾル(石原産業社製)を含浸後、エアブローにより液切り、 150°C で乾燥した。これを30幅に切断後、3個をジニトロジアンミン白金溶液(Pt 濃度: 1.33g/L)に含浸・再度乾燥し、残りの2個と共に 600°C で焼成した。両者を交互に積層して前処理用触媒層とした。

【実施例3】

【0037】

実施例1の前処理用触媒層の調製法を以下のように変更した以外は、上記実施例1と同様の方法で前処理触媒層を得た。

市販コージェライト製ハニカム担体(日立金属社製、セル数300cps、150角-20L)をアルミナゾル(日産化学社製、 Al_2O_3 含有量20%)に含浸後、液切り、乾燥および 450°C で2時間焼成して Al_2O_3 を 30g/L 担持した担体を得た。この担体に対し、硝酸パラジウムの硝酸溶液(Pd 濃度: 1g/L)をスポイドでハニカムの単セル内に流し込み、図2(B)のように千鳥状にPdが担持された部分と担持されない部分を存在させ、これを乾燥および 600°C で2時間焼成して前処理触媒層を得た。本触媒のPd担持部分におけるPd担持量は約 2g/L であった。

【実施例4】

【0038】

実施例2の前処理用触媒層の調製法におけるジニトロジアンミン白金溶液を硝酸ロジウム(Rh 濃度: 0.65g/L)溶液に変えた以外は、上記実施例2と同様にして前処理用の触媒を調製した。本触媒におけるRh担持部のRh担持量は 1g/L であった。

【0039】

〔比較例1~4〕

実施例1~4における前処理触媒層を、該前処理触媒における貴金属成分を全体に均一に担持して150角-20Lの貴金属担持触媒に変えた以外は、上記各実施例と同様にして比較例1~4の触媒層とした。

【0040】

実施例1~4および比較例1~4で得られた前処理触媒および貴金属触媒層を、各々ガス流通方向に沿って前流側に配置し、後流側に実施例1で調整した NH_3 分解触媒を充填し、それぞれ前処理触媒側から 200°C または 300°C に加熱したガス(NH_3 : 3%、水蒸気: 12%

、残り：空気）を50m³/hで送り、反応器出口での残存するNH₃およびNOの濃度を測定した。反応器入口温度と、反応器出口NH₃濃度およびNO濃度を表1に纏めて示した。

【0041】

【表1】

処理法	反応器入口温度 (°C)	反応器出口における濃度 (ppm)	
		NH ₃	NO
実施例 1	200	2	0.1
実施例 2	200	4	0.1
実施例 3	300	5	5
実施例 4	300	3	4
比較例 1	200	1以下	8000
比較例 2	200	1以下	12000
比較例 3	300	1以下	9000
比較例 4	300	1以下	14000

【0042】

表1から明らかなように、比較例1～4の方法では、何れも反応器の出口でNH₃が検出されず、大量のNOの発生が認められた。これに対し、実施例1～4では、NH₃およびNO濃度が共に5ppm以下に処理されており、前処理触媒を用いた本発明がによれば、多量のNO_xを副生させることなく、NH₃を効率よく、分解、処理できたことが分かる。

【産業上の利用可能性】

【0043】

排ガスや排水中のNH₃に対する規制は強化される方向にあり、NH₃分解技術に対する需要は今後益々増大すると考えられる。従って、多元機能触媒（NH₃分解触媒）で処理できるNH₃濃度範囲を大幅に広げ、これまで適用を断念するか、大量の希釈ガスを用いて濃度を下げた後、適用してきた高濃度NH₃含有ガスについても、少量の前処理触媒を追加するだけで処理できるようにした本発明は、上記ニーズにマッチするものであり、将来性が高い技術である。

【図面の簡単な説明】

【0044】

【図1】本発明に適用されるNH₃含有ガス浄化装置の基本構成を示す図。

【図2】本発明に適用される前処理用触媒層の構成例を示す図。

【図3】本発明の原理を説明する補足図。

【図4】本発明の別の実施例の基本構成を示す説明図。

【図5】従来技術を説明する図。

【図6】従来技術を説明する図。

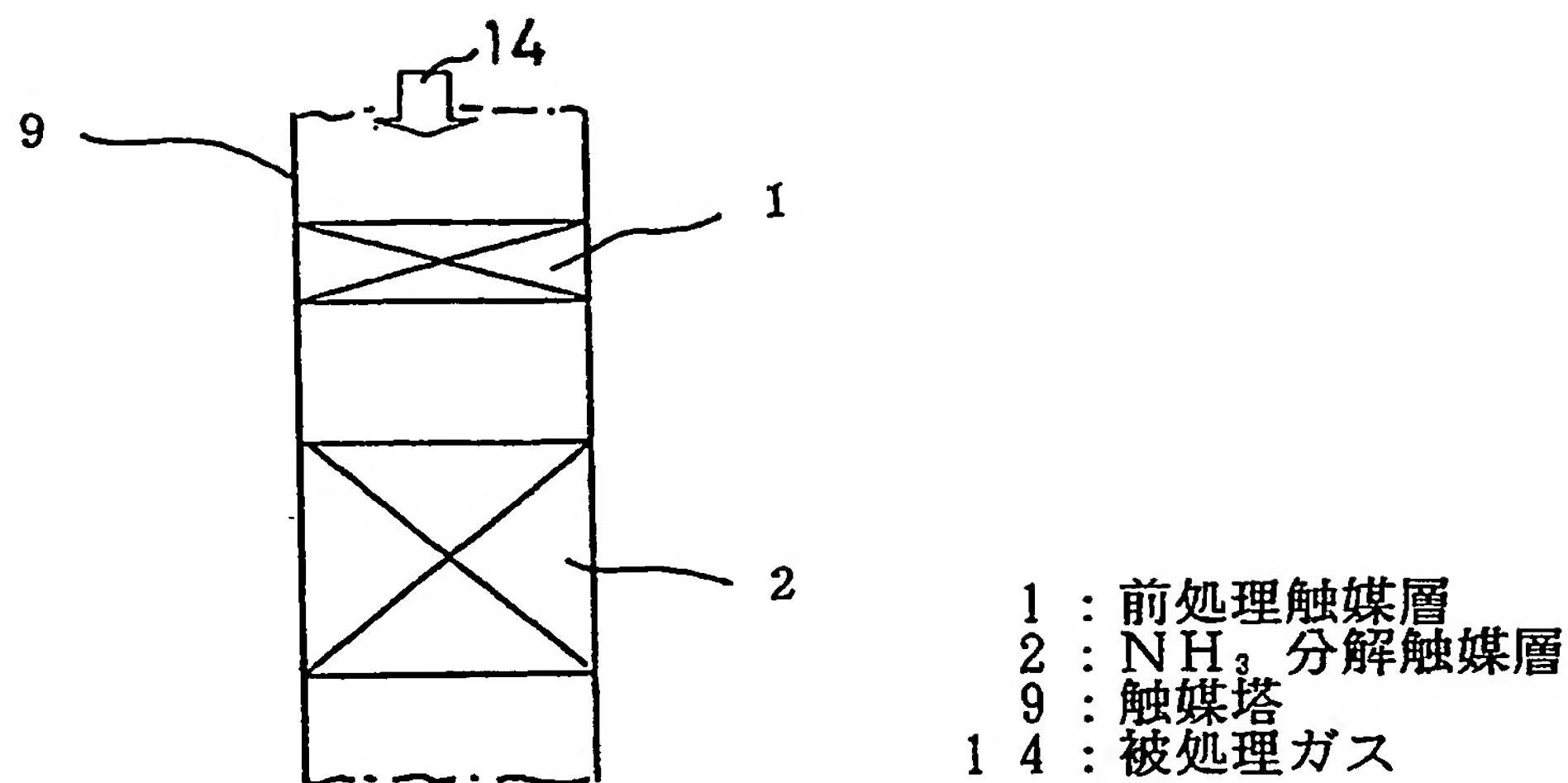
【符号の説明】

【0045】

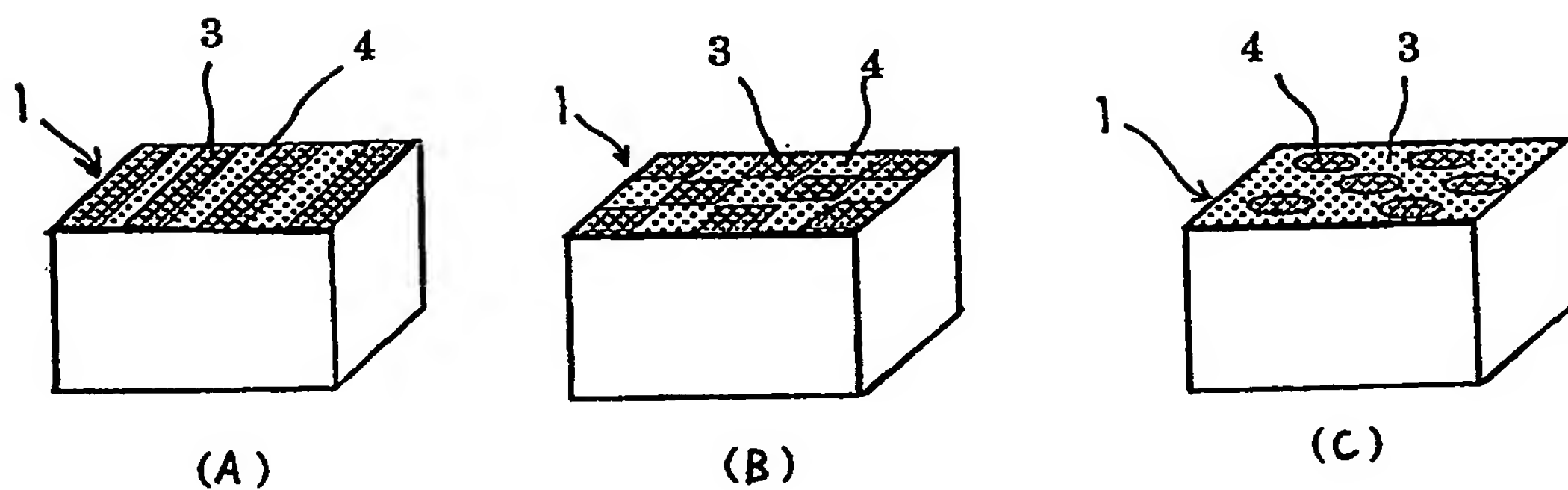
1…前処理触媒層、2…NH₃分解触媒層、3…NH₃酸化成分を有する流路、4…NH₃酸化成分を有しない流路、5…予熱器、6…ストリッピング塔、7…キャリアガス、8…希釈空気、9…触媒塔、10…中和槽、11…ポンプ、12…貴金属系酸化触媒層、

1 3 …処理済みガス、 1 4 …被処理ガス。

【書類名】 図面
【図 1】

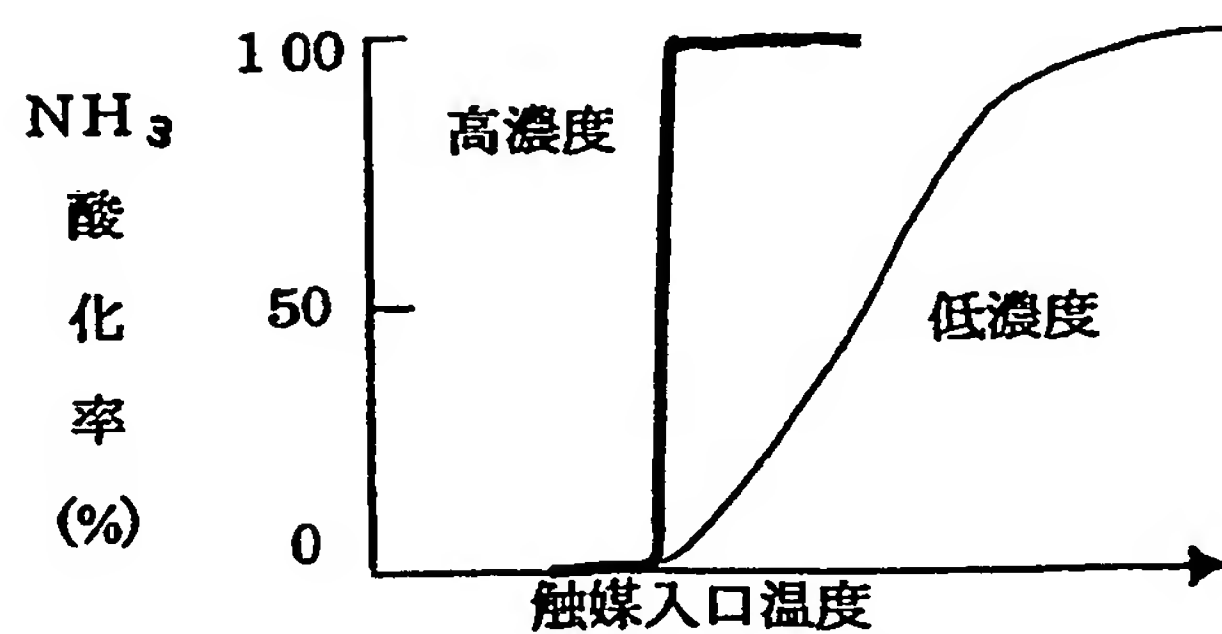


【図 2】

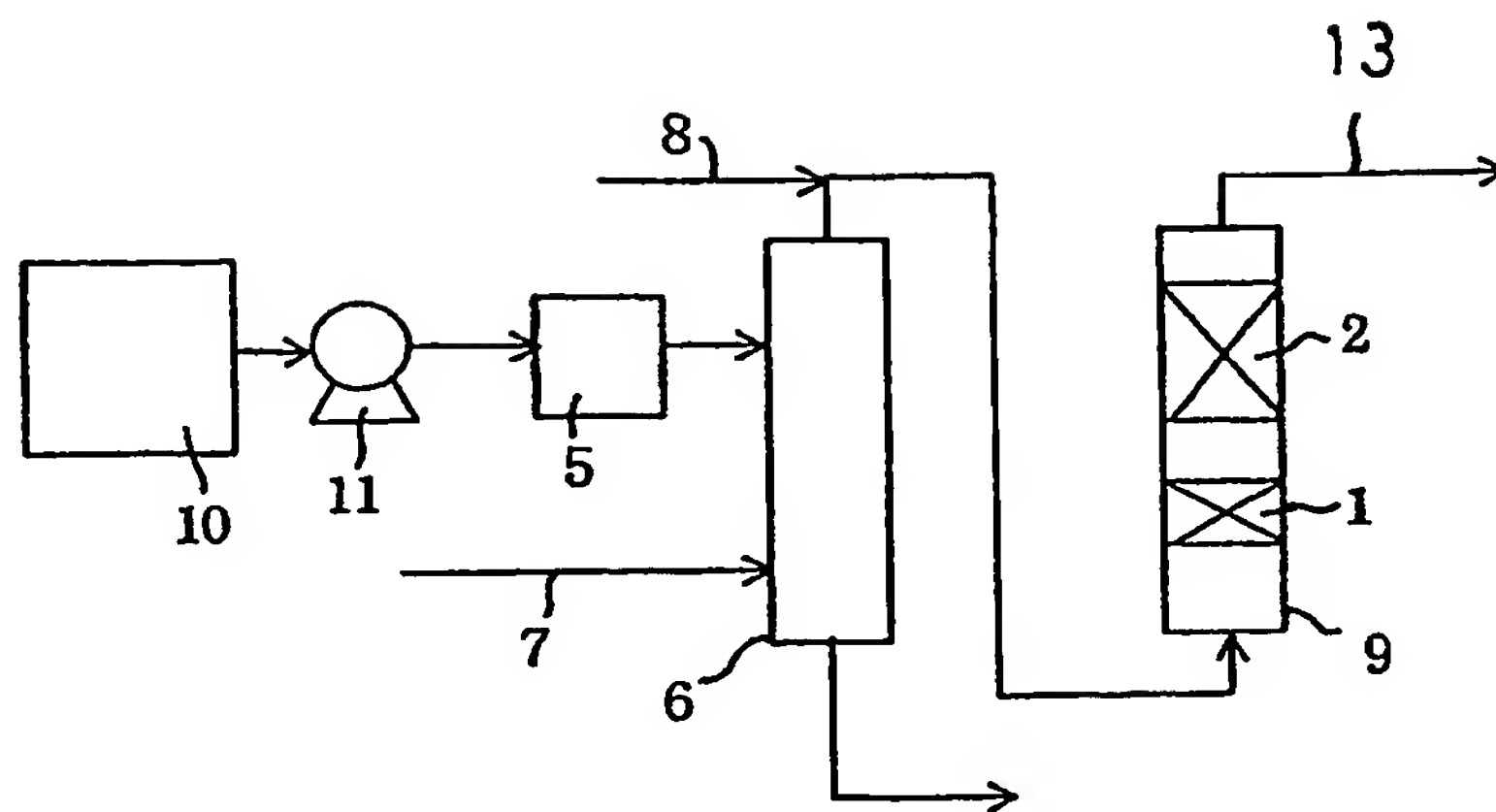


1 : 前処理触媒層
3 : NH_3 酸化成分を有する流路
4 : NH_3 酸化成分を有しない流路

【図 3】

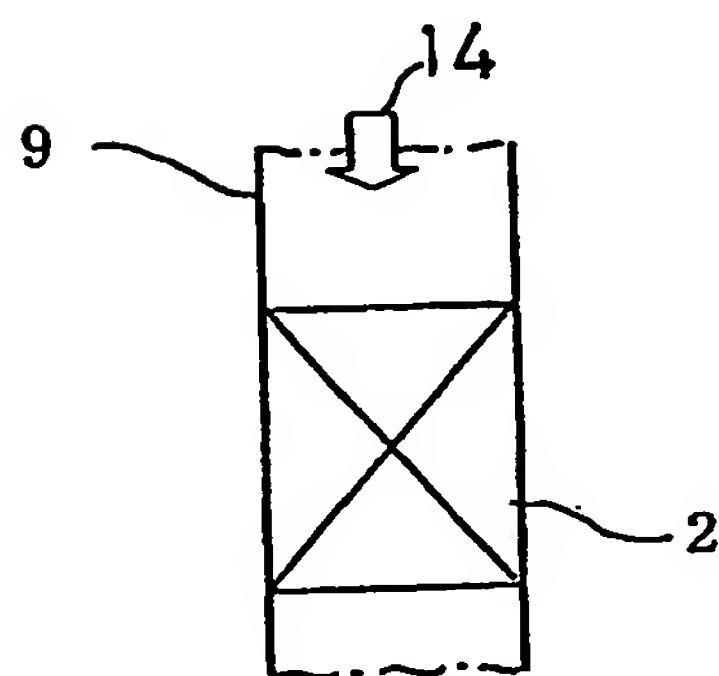


【図 4】



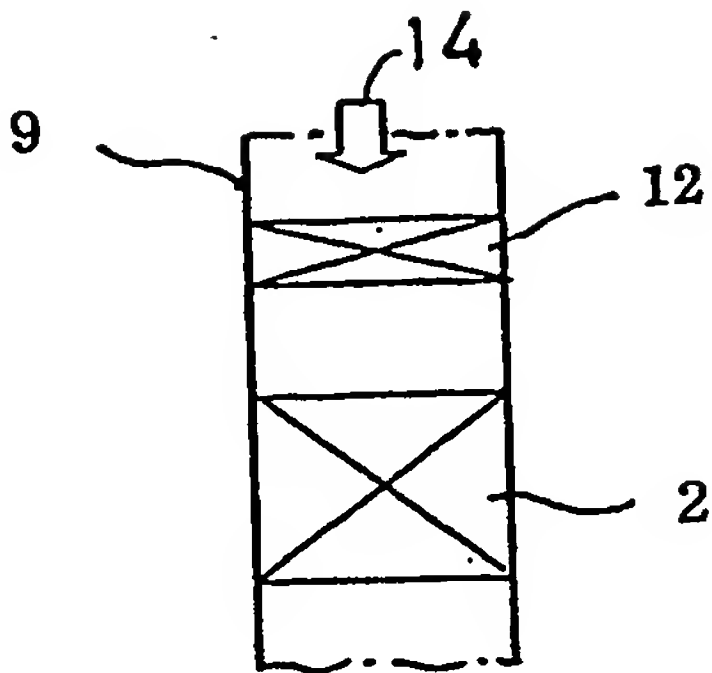
- 1 : 前処理触媒層
- 2 : NH_3 分解触媒層
- 5 : 予熱器
- 6 : ストリッピング塔
- 7 : キャリアガス
- 8 : 希釈空気
- 9 : 触媒塔
- 10 : 中和槽
- 11 : ポンプ
- 13 : 処理済みガス

【図 5】



- 2 : NH_3 分解触媒層
- 9 : 触媒塔
- 14 : 被処理ガス

【図 6】



- 2 : NH₃ 分解触媒層
- 9 : 触媒塔
- 12 : 貴金属系酸化触媒層
- 14 : 被処理ガス

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高濃度の NH_3 を含む排ガスまたは排水中の NH_3 を、触媒の劣化や副生物の増大を招くことなく処理することができる NH_3 含有ガスの浄化方法を提供する。

【解決手段】 触媒塔 9 を流通する NH_3 含有ガスを、 NH_3 を酸化して NO を生成する機能を有する流路と、この機能を有さない流路とを並列に有する前処理触媒層 1 に接触させた後、脱硝機能と、 NH_3 を酸化して NO を生成する機能とを併せもつ触媒層 2 に接触させて浄化すること。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 3 8 5 2 4 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 5 4 4 1]

1. 変更年月日	1 9 9 8 年 5 月 6 日
[変更理由]	住所変更
住 所	東京都港区浜松町二丁目 4 番 1 号
氏 名	バブコック日立株式会社

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.